

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/005847

International filing date: 29 March 2005 (29.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-105058  
Filing date: 31 March 2004 (31.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 26 May 2005 (26.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

28.4.2005

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 4 年 3 月 3 1 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 1 0 5 0 5 8

パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号

The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

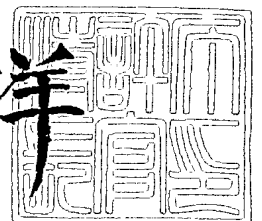
J P 2 0 0 4 - 1 0 5 0 5 8

出 願 人  
Applicant(s): 旭化成ケミカルズ株式会社

2 0 0 5 年 4 月 1 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川 洋



【書類名】 特許願  
【整理番号】 X1040362  
【提出日】 平成16年 3月31日  
【あて先】 特許庁長官 殿  
【国際特許分類】 C08L 77/00  
C08L 71/12  
【発明者】  
    【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市中袖 5 番地 1 旭化成ケミカルズ株式会社内  
    【氏名】 三好 貴章  
【特許出願人】  
    【識別番号】 303046314  
    【氏名又は名称】 旭化成ケミカルズ株式会社  
    【代表者】 藤原 健嗣  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 228095  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 要約書 1

## 【書類名】 特許請求の範囲

## 【請求項 1】

ポリアミド、ポリフェニレンエーテル及び芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックからなる水素添加ブロック共重合体を含む樹脂組成物であり、該水素添加ブロック共重合体の固め見かけ密度が、 $0.15 \sim 0.25 \text{ g/cm}^3$  である事を特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 2】

該水素添加ブロック共重合体の固め見かけ密度が、 $0.20 \sim 0.25 \text{ g/cm}^3$  である請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 3】

該水素添加ブロック共重合体のゆるめ見かけ密度が、 $0.1 \sim 0.25 \text{ g/cm}^3$  である請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 4】

該水素添加ブロック共重合体の下式で表される圧縮度が、 $5 \sim 25\%$  である請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

$$C = (1 - A/P) \times 100$$

ただし、C は圧縮度 [%]

P は固め見かけ密度 [ $\text{g/cm}^3$ ]

A はゆるみ見かけ密度 [ $\text{g/cm}^3$ ]

## 【請求項 5】

該水素添加ブロック共重合体の圧縮度が、 $5 \sim 15\%$  である請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 6】

該水素添加ブロック共重合体の数平均分子量が、 $200,000 \sim 300,000$  である請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 7】

該水素添加ブロック共重合体が、ポリスチレンーポリエチレンブチレンーポリスチレンブロック共重合体である請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 8】

該水素添加ブロック共重合体が、ポリフェニレンエーテルと異なる供給装置（フィーダー）を用いて供給される請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 9】

カーボンを含み請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 10】

該カーボンが、導電性カーボンブラック、カーボンフィブリル及び、カーボンファイバーから選ばれる 1 種以上である請求項 9 に記載の樹脂組成物。

## 【請求項 11】

該カーボンをあらかじめポリアミドに存在させたポリアミドマスターバッチの形態で添加してなる請求項 9 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 12】

該ポリアミドマスターバッチが、光学顕微鏡を用いて連続した  $3 \text{ mm}^2$  の面を観察した際に、カーボンの少なくとも一部が長径  $20 \sim 100 \mu\text{m}$  の凝集粒子として  $1 \sim 100$  個存在するマスターバッチである請求項 11 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 13】

該ポリアミドマスターバッチ中におけるカーボンの量が、 $5 \sim 25$  重量% である請求項 11 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 14】

該ポリアミドマスターバッチが、熔融したポリアミドにカーボンを添加した後、熔融混練する事により得られたマスターバッチである請求項 11 に記載の熱可塑性樹脂組成物。

## 【請求項 15】

請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物からなる射出成形体。

【請求項 1 6】

請求項 1 に記載の熱可塑性樹脂組成物からなる自動車外装部品

## 【書類名】明細書

## 【発明の名称】熱可塑性樹脂組成物

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、生産性（単位時間あたりの生産量）を大幅に向上させ、更に品質の安定性（同一ロット内の物性ばらつきが少ない）に優れた樹脂組成物及びそれからなる成形体に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

ポリアミド／ポリフェニレンエーテル組成物に使用されるエラストマーには、当業者の間で「クラム形状」と呼ばれている不定形の粉末の形態をしているものが多い。

これらは、かさ密度が低いため押出機に多量に供給する事がフィーダーの能力上、困難であり、生産性（時間あたりの生産量）を制限する必要があった。

更に、最近の二軸押出機の性能向上（メガコンパウンドタイプ）により、高回転・高吐出量の生産ができるようになってきており、時間あたりの生産性をより向上させる必要が生じているにも関わらず前述したような問題点により、生産性を思ったほど向上させられないという問題点が顕在化してきた。

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0003】

生産性を大幅に向上させ、更には品質を安定化させ得るポリアミド／ポリフェニレンエーテル樹脂組成物を提供する事である。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0004】

本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討を重ねた結果、特定の性状の水素添加ブロック共重合体を使用する事で上述した問題点が解決される事を見出し、本発明に到達した。

すなわち、本発明はポリアミド、ポリフェニレンエーテル及び芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックからなる水素添加ブロック共重合体を含む樹脂組成物であり、原料として使用する該水素添加ブロック共重合体の、固め見かけ密度（Packed Bulk Density）が、 $0.15 \sim 0.25 \text{ g/cm}^3$  である事を特徴とする熱可塑性樹脂組成物に関する。

## 【発明の効果】

## 【0005】

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、生産性（単位時間あたりの生産量）を大幅に向上させ、更に品質の安定性（同一ロット内の物性ばらつきが少ない）をも大幅に向上させる事ができる。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0006】

次に本発明で使用する事のできる各成分について詳しく述べる。

本発明で使用する事のできるポリアミドの種類としては、ポリマー主鎖中にアミド結合  $\text{-NH-C(=O)-}$  を有するものであれば、いずれも使用することができる。

一般にポリアミドは、ラクタム類の開環重合、ジアミンとジカルボン酸の重縮合、アミノカルボン酸の重縮合などによって得られるが、これらに限定されるものではない。

上記ジアミンとしては大別して脂肪族、脂環式および芳香族ジアミンが挙げられ、具体例としては、テトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、ウンデカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン、トリデカメチレンジアミン、2, 2, 4-トリメチルヘキサメチレンジアミン、2, 4, 4-トリメチルヘキサメチレンジアミン、5-メチルナノメチレンジアミン、1, 3-ビスアミノメチルシクロヘキサン、1, 4-ビスアミノメチルシクロヘキサン、m-フェニレンジアミン、p-フェニレンジアミン、m-キシリレ

ンジアミン、p-キシリレンジアミンが挙げられる。

【0007】

ジカルボン酸としては、大別して脂肪族、脂環式および芳香族ジカルボン酸が挙げられ、具体例としては、アジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、1, 1, 3-トリデカン二酸、1, 3-シクロヘキサンジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、ダイマー酸などが挙げられる。

ラクタム類としては、具体的にはε-カプロラクタム、エナントラクタム、ω-ラウロラクタムなどが挙げられる。

また、アミノカルボン酸としては、具体的にはε-アミノカプロン酸、7-アミノヘプタン酸、8-アミノオクタン酸、9-アミノナノン酸、11-アミノウンデカン酸、12-アミノドデカン酸、13-アミノトリデカン酸などが挙げられる。

【0008】

本発明においては、これらラクタム類、ジアミン、ジカルボン酸、ω-アミノカルボン酸は、単独あるいは二種以上の混合物にして重縮合を行って得られる共重合ポリアミド類はいずれも使用することができる。

また、これらラクタム類、ジアミン、ジカルボン酸、ω-アミノカルボン酸を重合反応機内で低分子量のオリゴマーの段階まで重合し、押出機等で高分子量化したものも好適に使用することができる。

本発明に用いるポリアミド樹脂の重合方法は特に限定されず、熔融重合、界面重合、溶液重合、塊状重合、固相重合、および、これらを組み合わせた方法のいずれでもよい。これらの中では、熔融重合がより好ましく用いられる。

【0009】

特に本発明で有用に用いることのできるポリアミド樹脂としては、ポリアミド6、ポリアミド6, 6、ポリアミド4, 6、ポリアミド11、ポリアミド12、ポリアミド6, 10、ポリアミド6, 12、ポリアミド6/6, 6、ポリアミド6/6, 12、ポリアミド6, MXD (m-キシリレンジアミン)、ポリアミド6, T、ポリアミド6, I、ポリアミド6/6, T、ポリアミド6/6, I、ポリアミド6, 6/6, T、ポリアミド6, 6/6, I、ポリアミド6/6, T/6, I、ポリアミド6, 6/6, T/6, I、ポリアミド6/12/6, T、ポリアミド6, 6/12/6, T、ポリアミド6/12/6, I、ポリアミド6, 6/12/6, Iなどが挙げられ、複数のポリアミドを押出機等で共重合化したポリアミド類も使用することができる。好ましいポリアミドは、ポリアミド6、ポリアミド6, 6、ポリアミド6/6, 6及び、それらの混合物であり、最も好ましくはポリアミド6、ポリアミド6, 6、又はそれらの混合物である。

【0010】

本発明で使用できるポリアミドの好ましい粘度範囲は、ISO 307に従い96%硫酸中で測定した粘度数が90~130 ml/gの範囲である。より好ましくは100~125 ml/gの範囲である。本発明においては上記した範囲外の粘度数を持つポリアミドの混合物であっても、その混合物の粘度数が上記した範囲内に入っていれば問題なく使用可能である。例えば、粘度数150 ml/gのポリアミドと粘度数80 ml/gのポリアミドの混合物、粘度数120 ml/gのポリアミドと粘度数115 ml/gのポリアミドの混合物等が挙げられる。これらの場合においても、その混合物の粘度数が上記範囲内である混合比率であれば構わない。これら混合物の粘度数が上記範囲内に有るか否かは、混合する重量比で96%硫酸に溶解して、ISO 307に従い粘度数を測定することで容易に確認することができる。

【0011】

ポリアミド混合物のなかで特に好ましい混合形態は、各々のポリアミドが粘度数90~139 ml/gの範囲内にあり、かつ粘度数の異なるポリアミドの混合物である。

ポリアミドは末端基として一般にアミノ基、カルボキシル基を有しているが、これらの好ましい比はアミノ基/カルボキシル基濃度比で、9/1~1/9であり、より好ましくは8/2~1/9、更に好ましくは6/4~1/9である。

また、末端のアミノ基の濃度としては少なくとも  $1 \times 10^5 \text{ mol/g}$  以上であることが好ましい。更に好ましくは  $1 \times 10^5$  以上、 $4 \times 10^5 \text{ mol/g}$  以下である。

末端のカルボキシル基の濃度としては少なくとも  $9 \times 10^5 \text{ mol/g}$  以上であることが好ましい。更に好ましくは  $9 \times 10^5$  以上、 $13 \times 10^5 \text{ mol/g}$  以下である。

#### 【0012】

これらポリアミド樹脂の末端基の調整方法は、当業者には明らかであるような公知の方法を用いることができる。例えばポリアミド樹脂の重合時に所定の末端濃度となるようにジアミン化合物、モノアミン化合物、ジカルボン酸化合物、モノカルボン酸化合物などから選ばれる1種以上を添加する方法が挙げられる。

また、本発明においては、ポリアミド樹脂の耐熱安定性を向上させる目的で公知となっている特開平1-163262号公報に記載されてあるような金属系安定剤も、問題なく使用することができる。

これら金属系安定剤の中で特に好ましく使用することのできるものとしては、 $\text{CuI}$ 、 $\text{CuCl}_2$ 、酢酸銅、ステアリン酸セリウム等が挙げられる。また、ヨウ化カリウム、臭化カリウム等に代表されるアルキル金属のハロゲン化塩も好適に使用することができる。これらは、もちろん併用添加しても構わない。

#### 【0013】

金属系安定剤および、又はアルキル金属のハロゲン化塩の好ましい配合量は、合計量としてポリアミド樹脂の100重量部に対して、0.001~1重量部である。

また、本発明においては、上述した金属系安定剤の他に、公知の有機安定剤も問題なく使用することができる。有機安定剤の例としては、イルガノックス1098等に代表されるヒンダードフェノール系酸化防止剤、イルガフォス168等に代表されるリン系加工熱安定剤、HP-136に代表されるラクトン系加工熱安定剤、イオウ系耐熱安定剤、ヒンダードアミン系光安定剤等が挙げられる。

これら有機安定剤の中でもヒンダードフェノール系酸化防止剤、リン系加工熱安定剤、もしくはその併用がより好ましい。

#### 【0014】

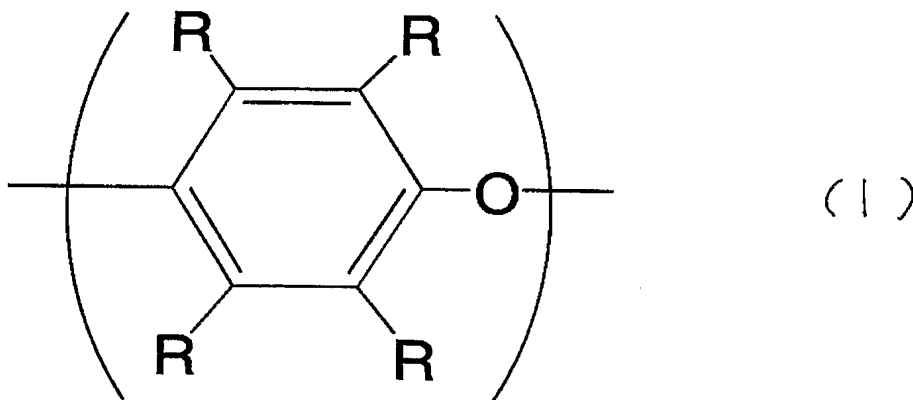
これら有機安定剤の好ましい配合量は、ポリアミド樹脂の100重量部に対して、0.001~1重量部である。

さらに、上記の他にポリアミドに添加することが可能な公知の添加剤等もポリアミド100重量部に対して10重量部未満の量で添加してもかまわない。

本発明で使用できるポリフェニレンエーテルとは、下記化学式の構造単位からなる、ホモ重合体及び／または共重合体である。

#### 【0015】

##### 〔化1〕



#### 【0016】

〔式中、Oは酸素原子、Rは、それぞれ独立して、水素、ハロゲン、第一級もしくは第二



級の低級アルキル、フェニル、ハロアルキル、アミノアルキル、炭化水素オキシ、又はハロ炭化水素オキシ（但し、少なくとも2個の炭素原子がハロゲン原子と酸素原子を隔てている）を表わす。]

#### 【0017】

本発明のポリフェニレンエーテルの具体的な例としては、例えば、ポリ（2，6-ジメチル-1，4-フェニレンエーテル）、ポリ（2-メチル-6-エチル-1，4-フェニレンエーテル）、ポリ（2-メチル-6-フェニル-1，4-フェニレンエーテル）、ポリ（2，6-ジクロロ-1，4-フェニレンエーテル）等が挙げられ、さらに2，6-ジメチルフェノールと他のフェノール類との共重合体（例えば、特公昭52-17880号公報に記載されてあるような2，3，6-トリメチルフェノールとの共重合体や2-メチル-6-ブチルフェノールとの共重合体）のごときポリフェニレンエーテル共重合体も挙げられる。ポリフェニレンエーテルとして2，6-ジメチルフェノールと2，3，6-トリメチルフェノールとの共重合体を使用する場合の各単量体ユニットの比率は、ポリフェニレンエーテル全量を100重量%としたときに、約80～約90重量%の2，6-ジメチルフェノールと、約10～約20重量%の2，3，6-トリメチルフェノールからなる共重合体が特に好ましい。

#### 【0018】

これらの中でも特に好ましいポリフェニレンエーテルとしては、ポリ（2，6-ジメチル-1，4-フェニレンエーテル）、2，6-ジメチルフェノールと2，3，6-トリメチルフェノールとの共重合体、またはこれらの混合物である。

本発明で用いるポリフェニレンエーテルの製造方法は公知の方法で得られるものであれば特に限定されるものではなく、例えば、米国特許第3306874号明細書、同第3306875号明細書、同第3257357号明細書及び同第3257358号明細書、特開昭50-51197号公報、特公昭52-17880号公報及び同63-152628号公報等に記載された製造方法等が挙げられる。

#### 【0019】

本発明で使用することのできるポリフェニレンエーテルの還元粘度（ $\eta_{sp}/c$ ：0.5g/dl、クロロホルム溶液、30℃測定）は、0.15～0.70dl/gの範囲であることが好ましく、さらに好ましくは0.20～0.60dl/gの範囲、より好ましくは0.40～0.55dl/gの範囲である。

本発明においては、2種以上の還元粘度の異なるポリフェニレンエーテルをブレンドしたものであることがより好ましい。例えば、還元粘度0.45dl/g以下のポリフェニレンエーテルと還元粘度0.50dl/g以上のポリフェニレンエーテルの混合物、還元粘度0.40dl/g以下の低分子量ポリフェニレンエーテルと還元粘度0.50dl/g以上のポリフェニレンエーテルの混合物等が挙げられるが、もちろん、これらに限定されることはない。

#### 【0020】

また、本発明で使用できるポリフェニレンエーテルは、全部又は一部が変性されたポリフェニレンエーテルであっても構わない。

ここでいう変性されたポリフェニレンエーテルとは、分子構造内に少なくとも1個の炭素-炭素二重結合または、三重結合及び少なくとも1個のカルボン酸基、酸無水物基、アミノ基、水酸基、又はグリシジル基を有する、少なくとも1種の変性化合物で変性されたポリフェニレンエーテルを指す。

#### 【0021】

該変性されたポリフェニレンエーテルの製法としては、（1）ラジカル開始剤の存在下、非存在下で100℃以上、ポリフェニレンエーテルのガラス転移温度未満の範囲の温度でポリフェニレンエーテルを熔融させることなく変性化合物と反応させる方法、（2）ラジカル開始剤の存在下、非存在下でポリフェニレンエーテルのガラス転移温度以上360℃以下の範囲の温度で変性化合物と熔融混練し反応させる方法、（3）ラジカル開始剤の存在下、非存在下でポリフェニレンエーテルのガラス転移温度未満の温度で、ポリフェニ

レンエーテルと変性化合物を溶液中で反応させる方法等が挙げられ、これらいずれの方法でも構わないが、(1) 及び、(2) の方法が好ましい。

#### 【0022】

次に分子構造内に少なくとも 1 個の炭素-炭素二重結合または、三重結合及び少なくとも 1 個のカルボン酸基、酸無水物基、アミノ基、水酸基、又はグリシジル基を有する少なくとも 1 種の変性化合物について具体的に説明する。

分子内に炭素-炭素二重結合とカルボン酸基、酸無水物基を同時に有する変性化合物としては、マレイン酸、フマル酸、クロロマレイン酸、シス-4-シクロヘキセン-1, 2-ジカルボン酸及びこれらの酸無水物などが挙げられる。特にフマル酸、マレイン酸、無水マレイン酸が良好で、フマル酸、無水マレイン酸が特に好ましい。

また、これら不飽和ジカルボン酸のカルボキシル基の、1 個または 2 個のカルボキシル基がエステルになっているものも使用可能である。

#### 【0023】

分子内に炭素-炭素二重結合とグリシジル基を同時に有する変性化合物としては、アリルグリシジルエーテル、グリシジルアクリレート、グリシジルメタアクリレート、エポキシ化天然油脂等が挙げられる。

これらの中でグリシジルアクリレート、グリシジルメタアクリレートが特に好ましい。

分子内に炭素-炭素二重結合と水酸基を同時に有する変性化合物としては、アリルアルコール、4-ペンテン-1-オール、1, 4-ペンタジエン-3-オールなどの一般式  $C_n H_{2n-3} OH$  ( $n$  は正の整数) の不飽和アルコール、一般式  $C_n H_{2n-5} OH$ 、 $C_n H_{2n-7} OH$  ( $n$  は正の整数) 等の不飽和アルコール等が挙げられる。

#### 【0024】

上述した変性化合物は、それぞれ単独で用いても良いし、2 種以上を組み合わせ用いても良い。

変性されたポリフェニレンエーテルを製造する際の変性化合物の添加量は、ポリフェニレンエーテル 100 重量部に対して 0.1~10 重量部が好ましく、更に好ましくは 0.3~5 重量部である。

ラジカル開始剤を用いて変性されたポリフェニレンエーテルを製造する際の好ましいラジカル開始剤の量は、ポリフェニレンエーテル 100 重量部に対して 0.001~1 重量部である。

#### 【0025】

また、変性されたポリフェニレンエーテル中の変性化合物の付加率は、0.01~5 重量% が好ましい。より好ましくは 0.1~3 重量% である。

該変性されたポリフェニレンエーテル中には、未反応の変性化合物及び/または、変性化合物の重合体が残存していても構わない。

また、変性されたポリフェニレンエーテル中に残存する変性化合物及び/または、変性化合物の重合体の量を減少させるために、該変性されたポリフェニレンエーテルを製造する際に、必要に応じてアミド結合及び/またはアミノ基を有する化合物を添加しても構わない。

#### 【0026】

ここでいうアミド結合を有する化合物とは、分子構造中にアミド結合  $\{-NH-C(=O)-\}$  構造を有する化合物であり、アミノ基を有する化合物とは末端に  $\{-NH_2\}$  構造を有する化合物である。これら化合物の具体例としては、オクチルアミン、ノニルアミン、テトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン等の脂肪族アミン類、アニリン、*m*-フェニレンジアミン、*p*-フェニレンジアミン、*m*-キシリレンジアミン、*p*-キシリレンジアミン等の芳香族アミン類、上記アミン類とカルボン酸、ジカルボン酸等との反応物、 $\epsilon$ -カプロラクタム等のラクタム類及び、ポリアミド樹脂等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

これらアミド結合またはアミノ基を有する化合物を添加する際の好ましい添加量は、ポリフェニレンエーテル 100 重量部に対し 0.001 重量部以上、5 重量部未満である。

好ましくは 0. 0 1 重量部以上、1 重量部未満、より好ましくは 0. 0 1 重量部以上、0. 1 重量部未満である。

#### 【0 0 2 7】

また、本発明に使用できるポリフェニレンエーテルは、重合溶媒に起因する有機溶剤が、ポリフェニレンエーテル 1 0 0 重量部に対して 5 重量%未満の量で残存していても構わない。これら重合溶媒に起因する有機溶剤は、重合後の乾燥工程で完全に除去するのは困難であり、通常数百 p p m から数%の範囲で残存しているものである。ここでいう重合溶媒に起因する有機溶媒としては、トルエン、キシレンの各異性体、エチルベンゼン、炭素数 1 ~ 5 アルコール類、クロロホルム、ジクロロメタン、クロルベンゼン、ジクロルベンゼン等の 1 種以上が挙げられる。

#### 【0 0 2 8】

また、本発明では、スチレン系熱可塑性樹脂をポリアミドとポリフェニレンエーテルの合計 1 0 0 重量部に対し、5 0 重量部未満の量であれば配合しても構わない。

本発明でいうスチレン系熱可塑性樹脂とは、ホモポリスチレン、ゴム変性ポリスチレン (H I P S)、スチレン-アクリロニトリル共重合体 (A S 樹脂)、スチレン-ゴム質重合体-アクリロニトリル共重合体 (A B S 樹脂) 等が挙げられる。

また、ポリフェニレンエーテルの安定化の為に公知となっている各種安定剤も好適に使用することができる。安定剤の例としては、酸化亜鉛、硫化亜鉛等の金属系安定剤、ヒンダードフェノール系安定剤、リン系安定剤、ヒンダードアミン系安定剤等の有機安定剤であり、これらの好ましい配合量は、ポリフェニレンエーテル 1 0 0 重量部に対して 5 重量部未満である。

#### 【0 0 2 9】

更に、ポリフェニレンエーテルに添加することが可能な公知の添加剤等もポリフェニレンエーテル 1 0 0 重量部に対して 1 0 重量部未満の量で添加しても構わない。

本発明で使用する事のできる芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックからなる水素添加ブロック共重合体としては、少なくとも 1 個の芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと少なくとも 1 個の共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックからなるブロック共重合体である。

本発明の芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックにおける「主体とする」とは、当該ブロックにおいて、少なくとも 5 0 重量%以上が芳香族ビニル化合物であるブロックを指す。より好ましくは 7 0 重量%以上、更に好ましくは 8 0 重量%以上、最も好ましくは 9 0 重量%以上である。また、共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックにおける「主体とする」に関しても同様で、少なくとも 5 0 重量%以上が共役ジエン化合物であるブロックを指す。より好ましくは 7 0 重量%以上、更に好ましくは 8 0 重量%以上、最も好ましくは 9 0 重量%以上である。

#### 【0 0 3 0】

この場合、例えば芳香族ビニル化合物ブロック中にランダムに少量の共役ジエン化合物もしくは他の化合物が結合されているブロックの場合であっても、該ブロックの 5 0 重量%が芳香族ビニル化合物より形成されていれば、芳香族ビニル化合物を主体とするブロック共重合体とみなす。また、共役ジエン化合物の場合においても同様である。

芳香族ビニル化合物の具体例としてはスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、ビニルトルエン等が挙げられ、これらから選ばれた 1 種以上の化合物が用いられるが、中でもスチレンが特に好ましい。

共役ジエン化合物の具体例としては、ブタジエン、イソプレン、ピペリレン、1, 3-ペンタジエン等が挙げられ、これらから選ばれた 1 種以上の化合物が用いられるが、中でもブタジエン、イソプレンおよびこれらの組み合わせが好ましい。

#### 【0 0 3 1】

ブロック共重合体の共役ジエン化合物ブロック部分のミクロ構造は 1, 2-ビニル含量もしくは 1, 2-ビニル含量と 3, 4-ビニル含量の合計量が 5 ~ 8 0 % が好ましく、さらには 1 0 ~ 5 0 % が好ましく、1 5 ~ 4 0 % が最も好ましい。

本発明におけるブロック共重合体は、芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロック a と共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロック b が a-b 型、a-b-a 型、a-b-a-b 型のから選ばれる結合形式を有するブロック共重合体である事が好ましい。これらの中でも a-b-a 型がより好ましい。これらはもちろん混合物であっても構わない。

また、本発明で使用する芳香族ビニル化合物と共役ジエン化合物のブロック共重合体は、水素添加されたブロック共重合体である必要がある。水素添加されたブロック共重合体とは、上述の芳香族ビニル化合物と共役ジエン化合物のブロック共重合体を水素添加処理することにより、共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックの脂肪族二重結合を少なくとも 50% 以上水素添加したものである。より好ましくは 80% 以上、最も好ましくは 98% 以上水素添加したものである。

#### 【0032】

本発明において、水素添加ブロック共重合体の「固め見かけ密度 (P)」 (Packed Bulk Density) が、 $0.15 \sim 0.25 \text{ g/cm}^3$  である必要がある。より好ましくは固め見かけ密度が、 $0.20 \sim 0.25 \text{ g/cm}^3$  の範囲内である。

固め見かけ密度が  $0.25 \text{ g/cm}^3$  を越えると、水素添加ブロック共重合体が供給装置 (フィーダー) のホッパー内でブロッキングし、安定的な供給ができなくなるため好ましくない。

また本発明においては、水素添加ブロック共重合体の「ゆるめ見かけ密度 (A)」 (Aerated Bulk Density) の好ましい範囲は、 $0.1 \sim 0.25 \text{ g/cm}^3$  の範囲である。

#### 【0033】

また、水素添加ブロック共重合体の「固め見かけ密度 (P)」と「ゆるめ見かけ密度 (A)」から下式で算出される「圧縮度 (C)」は、 $5 \sim 25\%$  である事が望ましい。より好ましくは、 $5 \sim 15\%$  の範囲である。

$$C = (1 - A/P) \times 100$$

ここで、C は圧縮度 [%] (Compressibility) であり、P は固め見かけ密度 [ $\text{g/cm}^3$ ] であり、A はゆるめ見かけ密度 [ $\text{g/cm}^3$ ] を表す。

#### 【0034】

本発明でいう「ゆるめ見かけ密度 (A)」とは、パウダーテスター (ホソカワミクロン社製) によって求められる粉体の見かけ密度の一つであり、具体的には  $100 \text{ cm}^3$  の容器に、静かにブロック共重合体を入れた時の  $100 \text{ cm}^3$  の容積中に入ったブロック共重合体の重量から測定可能であり、単位は  $\text{g/cm}^3$  である。ゆるめ見かけ密度が低いほど、単位体積あたりの重量は低いということとなり、ゆるめ見かけ密度が低いものほど同じ重量を供給するためにフィーダーはより回転数を高く設定する必要がある。

ゆるめ見かけ密度が低い水素添加ブロック共重合体では、フィーダーのスクリュウの 1 回転あたりの供給量が少なくなり、最終的なポリアミド/ポリフェニレンエーテル組成物の生産性を落とす可能性が高くなる。

本発明でいう「固め見かけ密度 (P)」とは、「ゆるめ見かけ密度」と同様に、パウダーテスターによって求められる粉体の見かけ密度の一つで  $100 \text{ cm}^3$  の容器に所定の振動を加えた後の  $100 \text{ cm}^3$  の容積中に入っているブロック共重合体の重量から測定可能であり、単位は同様に  $\text{g/cm}^3$  である。通常、加えられる振動 (上下動) の回数は 180 回であり、振幅は 5 cm を越えない範囲である。

#### 【0035】

フィーダーの中で、周囲の振動により水素添加ブロック共重合体粒子同士が絡み合い、塊となってしまうフィードができなくなってしまうのを抑制するため、圧縮率が 25% 以下の水素添加ブロック共重合体を使用する事が望ましい。

また、本発明で用いる事のできる水素添加ブロック共重合体の数平均分子量は、200,000 以上 300,000 以下である事が望ましい。この分子量範囲以外の水素添加ブロック共重合体の使用も可能であるが、少量の添加で高い衝撃性を発現するためには、この範囲の水素添加ブロック共重合体を、たとえ少量でも用いることが望ましい。

## 【0036】

本発明でいう数平均分子量とは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー測定装置 [GPC SYSTEM 21: 昭和電工 (株) 製] を用いて、紫外分光検出器 [UV-41: 昭和電工 (株) 製] で測定し、標準ポリスチレンで換算した数平均分子量の事を指す。[溶媒: クロロホルム、温度: 40℃、カラム: サンプル側 (K-G, K-800RL, K-800R)、リファレンス側 (K-805L×2本)、流量 10ml/分、測定波長: 254nm、圧力 15~17kg/cm<sup>2</sup>]。この時、重合時の触媒失活による低分子量成分が検出されることがあるが、その場合は分子量計算に低分子量成分は含めない。通常、計算された正しい分子量分布 (重量平均分子量/数平均分子量) は 1.0~1.2 の範囲内である。

## 【0037】

水素添加ブロック共重合体は、一般的にはリビングアニオン重合法により生産され、極めて分子量分布の狭い ( $M_w/M_n = 1.0 \sim 1.2$  程度) 共重合体が得られる。

また、これら芳香族ビニル化合物-共役ジエン化合物のブロック共重合体は、本発明の趣旨に反しない限り、結合形式の異なるもの、芳香族ビニル化合物種の異なるもの、共役ジエン化合物種の異なるもの、1, 2-結合ビニル含有量もしくは1, 2-結合ビニル含有量と3, 4-結合ビニル含有量の異なるもの、芳香族ビニル化合物成分含有量の異なるもの、水素添加率の異なるもの等混合して用いても構わない。もちろん、本発明に規定している水素添加ブロック共重合体以外のブロック共重合体を添加することに何ら問題はない。

## 【0038】

また、本発明で使用するブロック共重合体は、全部又は一部が変性されたブロック共重合体であっても構わない。

ここでいう変性されたブロック共重合体とは、分子構造内に少なくとも1個の炭素-炭素二重結合または、三重結合及び少なくとも1個のカルボン酸基、酸無水物基、アミノ基、水酸基、又はグリシジル基を有する、少なくとも1種の変性化合物で変性されたブロック共重合体を指す。

## 【0039】

該変性されたブロック共重合体の製法としては、(1) ラジカル開始剤の存在下、非存在下でブロック共重合体の軟化点温度以上250℃以下の範囲の温度で変性化合物と溶融混練し反応させる方法、(2) ラジカル開始剤の存在下、非存在下でブロック共重合体の軟化点以下の温度で、ブロック共重合体と変性化合物を溶液中で反応させる方法、(3) ラジカル開始剤の存在下、非存在下でブロック共重合体の軟化点以下の温度で、ブロック共重合体と変性化合物を溶融させることなく反応させる方法等が挙げられ、これらいずれの方法でも構わないが、(1)の方法が好ましく、更には(1)の中でもラジカル開始剤存在下で行う方法が最も好ましい。

ここでいう分子構造内に少なくとも1個の炭素-炭素二重結合または、三重結合及び少なくとも1個のカルボン酸基、酸無水物基、アミノ基、水酸基、又はグリシジル基を有する少なくとも1種の変性化合物とは、変性されたポリフェニレンエーテルで述べた変性化合物と同じものが使用できる。

## 【0040】

また、本発明のブロック共重合体中には、パラフィンの主成分とするオイルをあらかじめ混合したものを用いても構わない。パラフィンを主成分とするオイルをあらかじめ混合する事により、樹脂組成物の加工性を向上させることができる。

本発明におけるポリアミド、ポリフェニレンエーテル及び芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックからなる水素添加ブロック共重合体の組成比としては、この3種の合計を100重量部とした際に、ポリアミド40~70重量部、ポリフェニレンエーテル10~50重量部、水素添加ブロック共重合体5~20重量部である。より好ましくはポリアミド45~60重量部、ポリフェニレンエーテル25~45重量部、水素添加ブロック共重合体5~15重量部である。最も好

ましくは、ポリアミド45～55重量部、ポリフェニレンエーテル35～45重量部、水素添加ブロック共重合体8～13重量部である。

#### 【0041】

また、本発明においては、カーボンを追加しても構わない。

本発明において使用可能なカーボンとしては、例えばケッチェンブラックインターナショナル社から入手可能なケッチェンブラック (EC, EC-600JD) や、ハイペリオンキャタリスインターナショナル社から入手可能なカーボンフィブリル (BNフィブリル) を挙げることができる。カーボンフィブリルの中でも、特に国際公開特許WO94/23433号に開示されているようなカーボンフィブリルが好ましい。

カーボンの添加方法に関して、特に制限はないが、カーボンがあらかじめポリアミド中に配合されたマスターバッチの形態で添加する方法が好ましい。この場合、ポリアミドマスターバッチを100重量%としたとき、カーボンの量が5～15重量%である事が望ましい。

#### 【0042】

カーボンがあらかじめポリアミド中に配合されたマスターバッチとしては、特開平2-201811号公報に開示されてあるように、カーボンブラックを予めポリアミド中に均一分散させたマスターバッチ、あるいは、本出願人より出願され、審査係属中の国際出願特許JP03/9104に記載されているような、カーボンブラックがポリアミド中に適度に不均一分散しているマスターバッチ、もしくは、ハイペリオンキャタリストインターナショナル社から入手可能なポリアミド66/カーボンフィブリルマスターバッチ (商品名: Polyamide 66 with Fibril<sup>TM</sup> Nanotubes RMB4620-00:カーボンフィブリル量20%) 等のカーボンフィブリルマスターバッチ等が挙げられる。

#### 【0043】

これらマスターバッチの中でも、カーボンブラックがポリアミド中に適度に不均一分散しているマスターバッチが最も好ましい。

具体的には、光学顕微鏡を用いて連続した3mm<sup>2</sup>の面を観察した際に、カーボンの少なくとも一部が、長径20～100μmの凝集粒子として、1～100個存在するマスターバッチが好ましい。より好ましくは、光学顕微鏡を用いて連続した3mm<sup>2</sup>の面を観察した際に、長径が20～100μmの導電性カーボンブラックの凝集粒子が、2～30個存在するマスターバッチである。

#### 【0044】

マスターバッチ中のカーボンの凝集粒子の観察は、該マスターバッチペレットをガラスナイフ装着のミクロトームにて鏡面に切削し、その切断面を光学顕微鏡 (PME3:オリンパス社製) を用いて50倍の倍率で反射光を観察し、写真撮影を行い、3mm<sup>2</sup>についてカーボンの長径が20μm以上100μm以下の凝集粒子数を目視で数える事で可能である。観察方向に関しては、マスターペレットの形状はストランドカットの場合、通常、円柱状であるため、長辺に対してほぼ垂直な断面に切削し観察を行い、少なくとも別々のペレットから3つの断面を切り出して観察し、その平均値をもって凝集粒子数とする。

#### 【0045】

ポリアミドマスターバッチの好ましい製造方法としては、上流側に1箇所と下流側に1箇所以上の供給口を有する二軸押出機を使用して、上流側よりポリアミドを供給し、下流側よりカーボンを添加して熔融混練する製造方法が挙げられる。

この際に、ポリエステル系接着剤 (例えばポリオキシター (登録商標) の商品名でポリケムアロイ社 (英国) から入手可能) を、ポリアミドとともにもしくはカーボンとともに供給する事で外観の優れたストランドを得る事が可能である。

本発明において好ましいカーボンの量は、ポリアミド、ポリフェニレンエーテル及び芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックからなる水素添加ブロック共重合体の合計量を100重量部としたとき、0.5～4重量部である。より好ましくは1～3重量部である。

## 【0046】

本発明では、上記した成分のほかに、本成分の効果を損なわない範囲で必要に応じて付加的成分を添加しても構わない。

付加的成分の例としては、無機充填材（タルク、カオリン、ゾノトライト、ワラストナイト、酸化チタン、チタン酸カリウム、炭素繊維、ガラス繊維など）、無機充填材と樹脂との親和性を高める為の公知のシランカップリング剤、難燃剤（ハロゲン化された樹脂、シリコン系難燃剤、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、有機燐酸エステル化合物、ポリ燐酸アンモニウム、赤燐など）、滴下防止効果を示すフッ素系ポリマー、可塑剤（オイル、低分子量ポリオレフィン、ポリエチレングリコール、脂肪酸エステル類等）及び、三酸化アンチモン等の難燃助剤、カーボンブラック等の着色剤、帯電防止剤、各種過酸化物、酸化亜鉛、硫化亜鉛、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤等である。

## 【0047】

これらの成分の具体的な添加量は、ポリアミドとポリフェニレンエーテルの合計を100重量部としてとき、100重量部を越えない範囲（付加的成分の合計として）である。

本発明の組成物を得るための具体的な加工機械としては、例えば、単軸押出機、二軸押出機、ロール、ニーダー、ブラベンダープラストグラフ、バンバリーミキサー等が挙げられるが、中でも二軸押出機が好ましく、特に、上流側供給口と1カ所以上の下流側供給口を備えたスクリュウ直径40mm以上でL/Dが30以上の二軸押出機が最も好ましい。

この際の加工機械のシリンダー設定温度は特に限定されるものではなく、通常240～360℃の中から好適な組成物が得られる条件を任意に選ぶことができる。

## 【0048】

このようにして得られる本発明の組成物は、従来より公知の種々の方法、例えば、射出成形により各種部品の成形体として成形できる。

これら各種部品としては、例えばリレーブロック材料等に代表されるオートバイ・自動車の電装部品、ICトレイ材料、各種ディスクプレーヤー等のシャーシ、キャビネット等の電気・電子部品、各種コンピューターおよびその周辺機器等のOA部品や機械部品、さらにはオートバイのカウルや、自動車のバンパー・フェンダー・ドアパネル・各種モール・エンブレム・アウタードアハンドル・ドアミラーハウジング・ホイールキャップ・ルーフレール及びそのステイ材・スポイラー等に代表される外装品や、インストゥルメントパネル、コンソールボックス、トリム等に代表される内装部品等に好適に使用できる。

以下、本発明を実施例及び比較例により、本発明を更に詳細に説明する。

## 【実施例】

## 【0049】

芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックからなる水素添加ブロック共重合体として数平均分子量約250,000のポリスチレンーポリエチレンブチレンーポリスチレンブロック共重合体（商品名G1651）をクレイトンポリマージャパンより入手した。

入手したG1651の塊をほぐすため、20リットルの容積のヘンシェルミキサー〔FM20C/I：三井鉱山（株）製〕にて粉碎した。このときの回転数は500rpmであり、粉碎時間は2分であった。得られた微粉状G1651をメッシュの異なる金網を用いて分別し、異なる粉体特性をもつ2種類のG1651（サンプルAおよびB）を得た。得られた2種類の篩い分けG1651および篩い分け前のG1651の粉体特性（固めみかけ密度、ゆるみ見かけ密度及び圧縮度）を、パウダーテスター〔ホソカワミクロン株式会社製〕をもちいて測定し、測定結果を表1に記載した。

なお、これらサンプルは粉体特性のみが異なるものである。

## 【0050】

【例1～3】（例1：比較例、例2及び3：実施例）

旭化成ケミカルズ（株）の無水マレイン酸変性ポリフェニレンエーテル〔商品名：ザイロンR4919〕（以下、単にMPPE）100重量部に対して25重量部の該ブロック共重合体とをドライブレンドし、フィーダーのフィード能力比較を行った。フィーダーの

スクリー回転数を90%に固定して、20分間運転し、実際にフィードされた量を実測して比較した。

また同様に該ブロック共重合体単独でのフィード能力比較も実施した。

測定結果は表2に示した。

なお、フィードテストに使用したフィーダーは、Kートロン社製(スイス国)のK2-ML-S60タイプフィーダー(単軸スクリータイプ)である。

粉体特性の違いによりフィード量が大きく変わる事が判る。G1651単独でフィードしたものについては、フィーダーのホッパーにおいて自重で固まり、安定した供給を継続する事が困難であった。

#### 【0051】

##### [例4] (比較例)

上流側供給口と下流側供給口を有するL/Dが44のZSK40MC[コペリオン社製(ドイツ国)]のシリンダー温度を上流側供給口より下流側供給口までを320℃、下流側供給口よりダイまでを280℃に設定した。このときの下流側供給口の位置はスクリーの全長を1.0とした時に、上流側より見て約0.55の位置とした。また、約0.35の位置及び約0.90の位置の2箇所にはベントポートを設置し、真空吸引を行った。

#### 【0052】

上流側供給口より、MPPE40重量部及び、上述したヘンシェルミキサーで粉碎しただけの水素添加ブロック共重合体(商品名:クレイトンG1651)10重量部をドライブレンドしたものを供給し、熔融混練し、引き続き、下流側供給口よりポリアミドとして旭化成ケミカルズ株式会社より入手したレオナ1200[以下単にPAと略記]50重量部を供給し熔融混練した。開始時の吐出量は60kg/hとし、スクリー回転数は240rpm(吐出量/スクリー回転数比=0.25)とした。

生産性を比較するため、押出機への供給量を徐々に増加させていき、最大吐出量を測定したところ、75kg/hの吐出量となったところで、上流側供給口へ供給するフィーダーの供給能力の上限となったためこれを、最大吐出量とした。また、このときのスクリー回転数は、吐出量/スクリー回転数比を0.25に保ち、300rpmとした。

このとき得られたペレットを射出成形機(東芝機械株式会社製:ISO80EPN)を用いて、熔融樹脂温度290℃、金型温度90℃で、ISO294-1に記載されている多目的試験片を成形し、アルミ防湿袋中にて23℃で48時間静置した。

得られた試験片の両端を切断し、ISO179に準拠してエッジワイズ方向でのシャルピー衝撃強度を測定した。測定した結果は表3に記載した。

#### 【0053】

##### [例5及び6] (実施例)

例1のG1651をサンプルA及びサンプルBに変えた以外は、すべて例1と同様に実施し、最大吐出量とシャルピー衝撃強度を測定した。測定した結果は表3に記載した。

例4に比較して、例5及び6は、生産性(単位時間あたりの生産量)に優れ、かつ、シャルピー衝撃強度の安定性に優れる(物性ばらつきが少ない)事が判る。

#### 【0054】

##### [例7] (比較例)

例4で使用した押出機を同様の温度設定とし、上流側供給口より、旭化成ケミカルズ(株)より入手したポリフェニレンエーテルパウダー(商品名:旭化成PPE S201A)[以下、単にPPEと略記]40重量部と相溶化剤としての無水マレイン酸0.3重量部をドライブレンドした混合物及び、ヘンシェルミキサーで粉碎しただけの水素添加ブロック共重合体(商品名:クレイトンG1651)10重量部を供給し、熔融混練した。この際、ポリフェニレンエーテルパウダーと無水マレイン酸混合物とG1651は異なるフィーダーで供給した。引き続き、下流側供給口よりPAを30重量部及びPA中に導電性カーボンブラック(ケッチェンブラックEC600JD:ケッチェンブラックインターナショナル(株)製)を10重量%の濃度であらかじめ分散させたマスターバッチ[以下、単にKB-MBと略す]20重量部のドライブレンド物を供給した。



このときのKB-MBは、上述のZSK-40MCを用いて上流側供給口よりポリアミドを供給し、下流側供給口よりケッチェンブラックEC600JDを添加し熔融混練したものを使用した。この時のシリンダー設定温度は280℃であり、スクリュウ回転数は400回転/分とし、吐出量が50kg/hとなるよう各フィーダーを調節した。なお、得られたポリアミド-カーボンマスターバッチ中のカーボンの凝集粒子数を光学顕微鏡で確認したところ20個であった。

#### 【0055】

生産性を比較するため、例1と同様に、押出機への供給量を徐々に増加させていき、最大吐出量を測定したところ、90kg/hの吐出量となったところで、水素添加ブロック共重合体を供給するフィーダーの供給能力の上限となったためこれを、最大吐出量とした。また、このときのスクリュウ回転数は、吐出量/スクリュウ回転数比を例1と同様に0.25に保ち、360rpmとした。なお、このとき、例1で見られたような、水素添加ブロック共重合体の供給量の変動が見られた。

押出したストランドを採取し、5cm長に切断し（ストランド直径は0.29~0.3cmにストランド引き取り速度を変化させ合わせた）、その両端部分に銀ペーストを塗布し乾燥し、両端間で導電性があるか否かを確認したところ、約1.8~2.3kΩの導電性があることが確認された。

得られたペレットを例4と同様にシャルピー衝撃試験を実施した。結果は表4に記載した。

#### 【0056】

##### [例8及び9]（実施例）

例7のG1651をサンプルA及びサンプルBに変えた以外は、すべて例7と同様に実施し、最大吐出量とシャルピー衝撃強度を測定した。測定した結果は表4に記載した。

また、押出したストランドを採取し、5cm長に切断し（ストランド直径は0.29~0.3cmにストランド引き取り速度を変化させ合わせた）、その両端部分に銀ペーストを塗布し乾燥し、両端間で導電性があるか否かを確認したところ、約1.6~2.0kΩの導電性があることが確認された。

例7に比較して、例8及び9は、生産性（単位時間あたりの生産量）に優れ、かつ、シャルピー衝撃強度の安定性に優れる（物性ばらつきが少ない）事が判る。

#### 【0057】

##### [例10]（比較例）

下流側供給口より添加する成分をPAを42重量部及びポリアミド66/カーボンフィブリルマスターバッチ（商品名：Polyamide 66 with Fibril<sup>T</sup> M Nanotubes RMB4620-00：カーボンフィブリル量20%）等のカーボンフィブリルマスターバッチ（CF-MB）8重量部のドライブレンド物に変更した以外はすべて例7と同様に実施し、最大吐出量とシャルピー衝撃強度を測定し、結果を表5に記載した。

またこの時、押出したストランドを採取し、5cm長に切断し（ストランド直径は0.29~0.3cmにストランド引き取り速度を変化させ合わせた）、その両端部分に銀ペーストを塗布し乾燥し、両端間で導電性があるか否かを確認したところ、約0.9~1.5kΩの導電性があることが確認された。

#### 【0058】

##### [例11]（実施例）

下流側供給口より添加する成分をPAを42重量部及びポリアミド66/カーボンフィブリルマスターバッチ（商品名：Polyamide 66 with Fibril<sup>T</sup> M Nanotubes RMB4620-00：カーボンフィブリル量20%）等のカーボンフィブリルマスターバッチ（CF-MB）8重量部のドライブレンド物に変更した以外はすべて例9と同様に実施し、最大吐出量とシャルピー衝撃強度を測定し、結果を表5に記載した。

またこの時、押出したストランドを採取し、5cm長に切断し（ストランド直径は0.

29~0.3cmにストランド引き取り速度を変化させ合わせた)、その両端部分に銀ペーストを塗布し乾燥し、両端間で導電性があるか否かを確認したところ、約0.7~1.0k $\Omega$ の導電性があることが確認された。

例10比較して、例11は、生産性(単位時間あたりの生産量)に優れ、更に、シャルピー衝撃強度の安定性に優れる(物性ばらつきが少ない)事が判る。

【0059】

【表1】

	PBD(a)	ABD(b)	C(c)
G1651	0.279	0.218	21.9
サンプル A	0.211	0.169	19.9
サンプル B	0.234	0.209	10.7

(a):PBD:固めみかけ密度(Packed Bulk Density)

(b):ABD:ゆるめみかけ密度(Aerated Bulk Density)

(c):圧縮度(Compressibility)

【0060】

【表2】

		吐出量(a)	吐出量(b)
例.1	G1651	21kg/h	5~10kg/h(c)
例.2	サンプル A	27kg/h	11kg/h
例.3	サンプル B	45kg/h	15kg/h

(a):MPPE/ブロック共重合体=80/20の最大供給量(単位は重量部)

(b):ブロック共重合体単独での最大供給量

(c):フィーダーホッパー内ブロッキングが発生し、フィードが不安定

【0061】

【表3】

ブロック共重合体	吐出量(a)	スクリー回転数(b)	シャルピー衝撃強度
例.4(G1651)	75kg/h	300rpm	26~30kJ/m <sup>2</sup> (c)
例.5(サンプル A)	100kg/h	400rpm	30~32kJ/m <sup>2</sup> (c)
例.6(サンプル B)	135kg/h	540rpm	30~31kJ/m <sup>2</sup> (c)

MPPE/ブロック共重合体/PA=40/10/50(単位は重量部)

(a):PA/PPE 組成物としての吐出量

(b):押出機のスクリー回転数

(c):10本測定中のばらつき範囲

【0062】

【表 4】

ブロック共重合体	吐出量	スクリー回転数	シャルピー衝撃強度
例.7(G1651)	90kg/h	360rpm	12~24kJ/m <sup>2</sup>
例.8(サンプル A)	100kg/h	400rpm	19~23kJ/m <sup>2</sup>
例.9(サンプル B)	125kg/h	500rpm	22~24kJ/m <sup>2</sup>

PPE/ブロック共重合体/MAH/PA/KB-MB=40/10/0.3/30/20(単位は重量部)

MAHは無水マレイン酸

【 0 0 6 3 】

【表 5】

ブロック共重合体	吐出量	スクリー回転数	シャルピー衝撃強度
例.10(G1651)	90kg/h	360rpm	15~26kJ/m <sup>2</sup>
例.11(サンプル B)	125kg/h	500rpm	24~25kJ/m <sup>2</sup>

PPE/ブロック共重合体/MAH/PA/CF-MB=40/10/0.3/42/8(単位は重量部)

MAHは無水マレイン酸

【産業上の利用可能性】

【 0 0 6 4 】

本発明の組成物は、従来技術に比べ、生産性（単位時間あたりの生産量）を大幅に向上させ、更に品質の安定性（同一ロット内の物性ばらつきが少ない）をも大幅に向上させる事ができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 ポリアミド／ポリフェニレンエーテルアロイの生産性を大幅に向上させ、更にはその品質をも安定化させる樹脂組成物組成物の提供。

【解決手段】 ポリアミド、ポリフェニレンエーテル及び芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックからなる水素添加ブロック共重合体を含む樹脂組成物において、該水素添加ブロック共重合体の固め見かけ密度が、 $0.15 \sim 0.25 \text{ g/cm}^3$  であるものを使用する。

【選択図】 選択図なし

特願 2 0 0 4 - 1 0 5 0 5 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 3 0 3 0 4 6 3 1 4 ]

1. 変更年月日	2 0 0 3 年 8 月 2 0 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区有楽町一丁目 1 番 2 号
氏 名	旭化成ケミカルズ株式会社